

# 触媒スクラップ中の白金族金属を効率的に分離回収する 新技術の開発

## Development of Novel Techniques for Efficiently Recovering Platinum Group Metals from Spent Catalysts

研究代表者 京都大学大学院工学研究科材料工学専攻 特定准教授 谷ノ内 勇樹\*

Yu-ki TANINOUCHI

共同研究者 東京大学生産技術研究所 教授 岡部 徹

Toru H. Okabe

Among platinum group metals (PGMs), Pt, Pd, and Rh are the essential constituents of automobile catalysts. Since the amount of PGMs recovered from end-of-life automobile catalysts will increase markedly in the future, development of more efficient and environment-friendly recycling process is an important issue. Current recycling processes involve many difficulties in efficient recovery of PGMs because PGMs are chemically stable and are present as minor components in spent catalysts. Thus, in this study, we developed and demonstrated novel recycling processes where the PGMs can be magnetically concentrated directly from spent catalysts and then effectively dissolved into aqueous solution. The proposed recycling processes involve chemical pretreatment for PGMs in catalyst scraps. i.e., Fe deposition using electroless plating technique or alloying with Fe using the reaction with  $\text{FeCl}_2$  vapor. The proposed processes can be performed using relatively small-scale equipment with low energy consumption. Thus, they should be useful as a pretreatment for the currently used metallurgical recycling processes. Furthermore, they have potential to facilitate the recovery of PGMs at scrapping sites for old automobiles.

### 要旨

白金族金属 (Platinum group metals, PGMs) に分類される白金, パラジウム, ロジウムは, 自動車の排ガス浄化触媒 (自動車触媒) に不可欠なレアメタルである。使用済み自動車触媒から回収される PGMs の量は今後大きく増大すると予想されており, より効率的かつ環境調和性に優れたリサイクルプロセスの開発が重要な課題となっている。PGMs は化学的に安定であるとともに, 触媒中の含有量は合計でも数千 ppm 程度である。そのため, 現行のリサイクルプロセスでは, 簡便な手法で効率良く PGMs を分離回収するのが難しい。そこで本研究では, 触媒スクラップ中の PGMs を磁力によって濃縮分離した後に水溶液中へと迅速に溶解抽出する新たなリサイクル技術の開発に取り組んだ。具体的には、「無電解めっき法による鉄の電析」あるいは「塩化鉄蒸気との反応による鉄合金化」といった化学的前処理を含むリサイクル技術であり, 本研究ではその有用性を実証した。提案する新技術は, 原理的には, 大規模な設備を必要とせず低コストで実施が可能である。その

ため開発が進めば, 現行リサイクルプロセスの前処理として用いることにより, リサイクル全体の効率や環境調和性を向上できる。さらに本技術は, 使用済み触媒を収集する各都市部の拠点や自動車の解体現場において PGMs を濃縮分離し粗回収する技術 (オンサイト型リサイクル技術) としても利用できると期待される。

### 1. はじめに

白金族金属 (Platinum group metals, PGMs) に分類される白金 (Pt), パラジウム (Pd), ロジウム (Rh) は, 特異な触媒性能を有することから, その多くが自動車の排ガスを浄化するための触媒 (自動車触媒) として使用されている (図 1)<sup>(1)</sup>。環境規制の高まりや自動車需要の増加によって, 自動車触媒用の PGMs の需要は過去 30 年で大幅に増加しており (図 2)<sup>(2)</sup>, 今後もその傾向は継続すると予想される。一方, PGMs の天然資源は, 可採年数から判断すると当面枯渇の心配はないものの, 南アフリカとロシアに大きく偏在しており, 資源の安定供給に不安要素を抱えてい

\* 助成決定時: 東京大学生産技術研究所 助教

る。また、鉱石中に含まれるPGMsの濃度は、高品位の鉱石においても、5ppm程度にすぎない<sup>(3)~(4)</sup>。このため、資源供給国で行われているPGMsの採掘や製錬には、廃棄物の発生やエネルギー消費などの点で、大きな環境負荷がともなう。日本のような資源のほとんどを輸入し、工業製品を輸出して富を生んでいる産業国にとっては、資源の長期的かつ多角的な安定確保の点だけでなく、地球の環境保全に対する貢献の点でも、使用済み自動車触媒からPGMsをリサイクルする取り組みが非常に重要である。

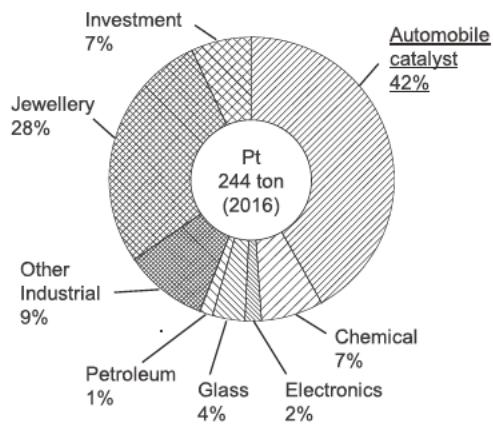


図1 2016年におけるPtの用途別需要<sup>①</sup>。自動車触媒は、Ptの需要の約40%、Pdの需要の約75%、Rhの需要の約80%を占める。

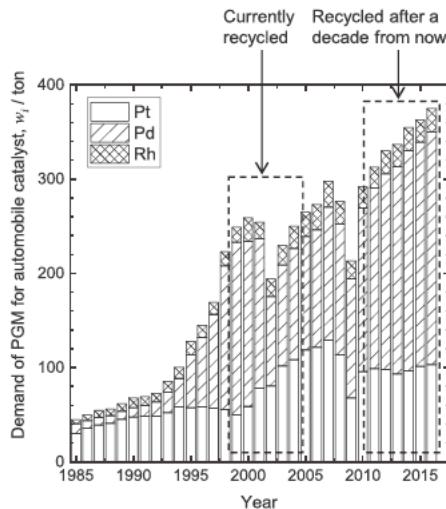


図2 自動車触媒用のPGMs需要の推移<sup>②</sup>。自動車触媒から回収されるPGMsの量は、今後大幅に増大する。

自動車触媒は、基本的にはハニカム状のセラミクス構造体であり、その複雑かつ多孔質な表面にPGMsの微粒子が担持されている。PGMsの価格が高いため、触媒スクラップからのPGMsの回収は世界中で活発

に行われている。図3に、一般的なリサイクルプロセスを示す。自動車から回収された使用済み触媒は、機械的に粉砕された後、銅や鉄などを抽出剤（コレクターメタル）として利用する高温乾式プロセスや、強力な酸化剤を含む酸溶液に溶解する湿式プロセスを組み合わせて処理されている<sup>(3)~(5)</sup>。しかしながら、スクラップ中のPGMsの含有量が合計でも数千ppm程度（触媒スクラップの大部分は非回収対象であるセラミクス）である上、PGMsは化学的安定性が高く水溶液中への溶解・抽出が困難（PGMsは難溶解性）であるため、現行のプロセスではPGMsの抽出・回収に時間と手間がかかり、環境負荷も大きい。また、特殊な設備を有する製錬所やリサイクル工場にスクラップを輸送しなければ適切な処理を行うことは難しい。使用済み自動車触媒から回収されるPGMsの量は今後も大きく増加すると予想され（図2）、リサイクルプロセスを効率や環境調和性の観点でより高度化していくことが必要である。

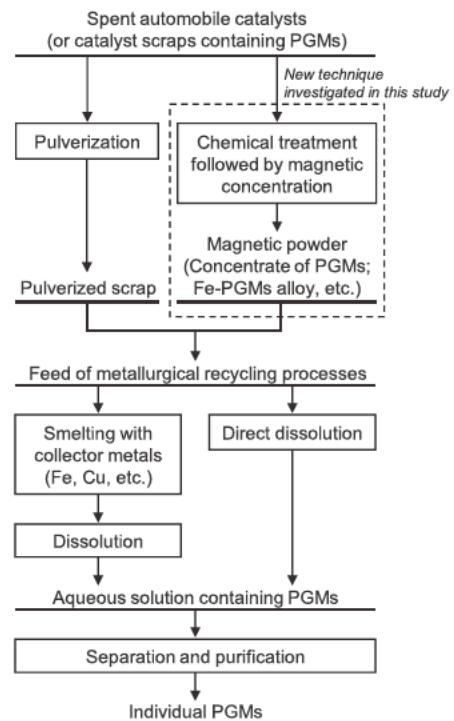


図3 自動車触媒の一般的なリサイクルプロセス、および本研究で開発に取り組んだ新規リサイクル技術<sup>[1]~[4]</sup>。触媒スクラップ中のPGMsを磁力で分離可能かつ酸に易溶な状態へと変換するため、「無電解鉄めっき」あるいは「塩化鉄物蒸気との反応」を利用した化学的な前処理を行う。

そこで本研究では、触媒スクラップ中のPGMsを磁力で濃縮分離するとともに水溶液中に溶解しやすい状態に変換する新たなリサイクル技術の開発を行った。廃棄物中の貴金属を効率良く物理的に回収する手法として、化学的前処理と物理選別を組み合わせた手法が過去に提案されている<sup>⑩</sup>。本研究で開発に取り組んだリサイクル技術も、このコンセプトを用いている。具体的には、図3中に示すように、磁力選別によるPGMsの濃縮分離に先立ち、「無電解鉄めっき」あるいは「塩化鉄物蒸気との反応」を利用してした化学的前処理を触媒スクラップ中のPGMsに対して行う。

## 2. 無電解鉄めっきを利用する新規リサイクル技術の開発

### 2.1 開発技術のコンセプト

図4に新規リサイクル技術のコンセプトを示す<sup>11</sup>。多孔質な触媒層に担持されているPGMsへの化学的な前処理として、無電解めっき法により強磁性体である鉄(Fe)を電析する。必要があれば、めっき膜と触媒層の密着性の向上やFeとPGMsとの合金化の促進のため、めっき後に簡単な熱処理を行う。その後、粉碎と磁力選別を行えば、触媒スクラップの主成分かつリサイクル対象ではないセラミクスは非磁性物として除去され、PGMsが濃縮された磁性物が得られると期待される。

PGMsを水溶液中に溶解するには、通常、王水などの強力な酸化力を有する酸で長時間の処理が必要である。さらに、強力な酸化剤を含む酸を用いてスクラップを処理すると、PGMs以外の成分も溶解するため、重金属や酸化剤を含む有害な廃液が多量に発生する。一方、図4に示すリサイクル技術では、スクラップ中のセラミクス成分が磁力選別によって予め除去されるとともに、PGMsはFeと合金化した酸溶解性の高い状態で分離回収されるため、溶解速度や環境負荷の点でより効率的にPGMsを水溶液中に抽出することが可能と期待される。

### 2.2 無電解鉄めっき法の開発

ニッケルや銅の無電解めっきは産業的に広く利用されており、過去に数多くの研究開発がなされている。一方、鉄の無電解めっきについては、産業的な

需要がないため、過去の研究例は極めて限られる<sup>7~10</sup>。また、無電解めっきを行う際には、被覆対象の表面に対して、活性化や触媒化など複雑かつ手間のかかる前処理が必要となることが多い。そこで本研究では、単純に浸漬して加温するだけで、PGMsの粉末にFeを効率良く電析可能な無電解めっき条件を探した。浴組成や浴温を始めとするめっき条件について種々の検討を行った結果、表1に示す還元剤として水素化ホウ素ナトリウムを、錯化剤として酒石酸塩を含む浴を用いれば、Pt、Pd、Rhの全てに対しても、特別な前処理を行うことなくめっきが可能であることが分かった。

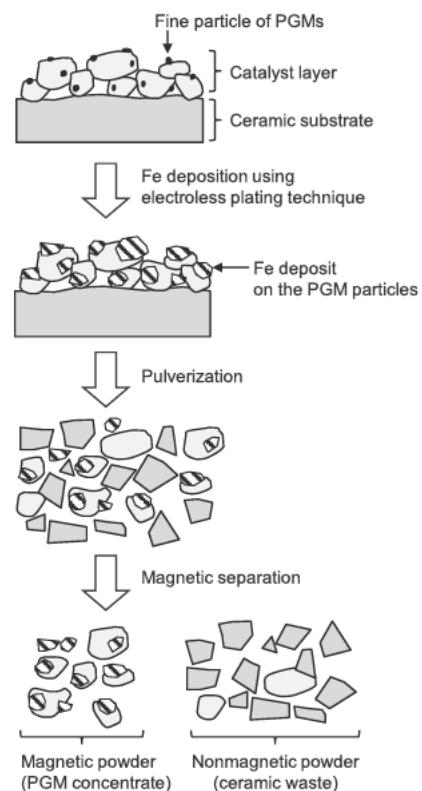


図4 無電解鉄めっきを利用する新たなリサイクル技術の模式図<sup>11</sup>。磁力選別により回収された磁性物(PGMs濃縮物)からは、より効率的にPGMsを酸化浸出することが可能。

表1 無電解鉄めっき浴の組成。Pt、Pd、Rh粉末について、浸漬して45℃程度で保持するだけでめっきが進行。

	Composition, $C_i / \text{g}\cdot\text{L}^{-1}$
$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	~12
$\text{NaBH}_4$ *	~20
$\text{C}_4\text{H}_4\text{KNaO}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ **	~120

The pH was approximately 12.5.

\*: Sodium borohydride. Reducing agent.

\*\*: Potassium sodium tartrate tetrahydrate.

Complex agent.

## 2.3 磁力選別による白金族金属の濃縮分離の実証

触媒スクラップを模した試料を用いて実験を行い、無電解鉄めっきと磁力選別の組み合わせた技術により PGMs を物理的に濃縮分離できることを実証した<sup>[1]</sup>。図 5 に、模擬触媒の外観写真と断面組織を示す。平板状の模擬触媒は自作したものであり、アルミナの平板上に PGMs を担持した多孔質触媒層が形成されている。ハニカム状の模擬触媒は、未使用的自動車触媒から切り出したものであり、使用済みの状態に近づけるため事前に加熱処理を行った。

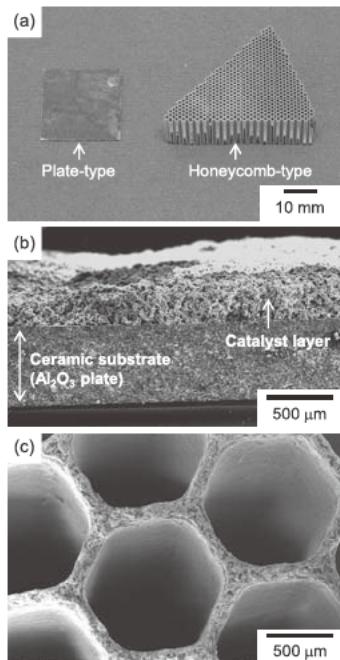


図 5 (a) 模擬触媒の外観写真、および(b)平板状試料と(c)ハニカム状試料の断面組織<sup>[1]</sup>。

模擬触媒を表 1 の浴中に浸漬し、加温したところ、PGMs が担持された多孔質触媒層には鉄がめっきされた(図 6)。また、無電解鉄めっき処理後に、乳鉢で粉碎し、手持ち磁石で磁力選別を行ったところ、PGMs が濃縮された磁性粉末を得ることができた。

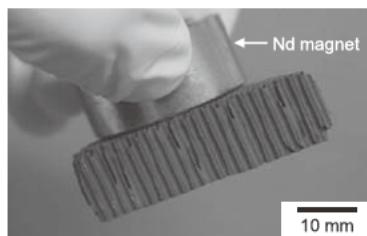


図 6 無電解鉄めっき処理後のハニカム状模擬触媒。鉄がめっきされたため、磁石に引き寄せられる。

平板状の模擬触媒を用いた実験では、PGMs の濃度が 3-5 倍に濃縮されるとともに、触媒中の PGMS のほぼ全量が磁性粉末として回収された。ハニカム状の模擬触媒を用いた場合は、めっき後に熱処理を行った場合でも、現時点では、PGMs の濃縮率は 2 倍程度、回収率は 60% 程度であった。

本研究によって、無電解鉄めっき後に磁力選別を行うことで、触媒スクラップから PGMS を濃縮分離できることが示された。ただし、この新たなリサイクル技術の実用化に向けては、PGMs の濃縮率と回収率の向上が必要である。本研究では、粉碎や磁力選別といった操作を初步的な手法で行った。今後、このようなプロセス条件の最適化を行えば、濃縮分離の効率は向上できると予想される。

## 2.4 白金族金属の酸溶解性の向上の実証

無電解鉄めっきを利用した前処理によって、PGMs の酸溶解性を向上できることを実証した<sup>[2]</sup>。具体的には、PGMs を担持したアルミナ粉末を用いて、無電解鉄めっき処理により PGMS の王水への酸化浸出を促進できることを明らかとした。

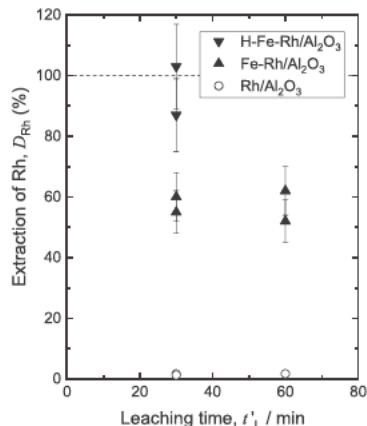


図 7 40°C の王水による浸出実験の結果の一例<sup>[2]</sup>。Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 前処理無しの試料、Fe-Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 無電解鉄めっき後の試料、H-Fe-Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 無電解鉄めっき後に熱処理を行った試料。無電解鉄めっきを利用した前処理により、Rh の溶解性が大幅に向上了。

結果の一例として、図 7 に、Rh 搾持アルミナ粉末に関する実験結果を示す<sup>[2]</sup>。Rh は、PGMs の中でも酸溶解が特に困難な元素である。前処理を行っていない場合、40°C の王水中で 60 分間保持しても、Rh はほとんど溶解しない。一方、表 1 に示した浴を用いて無電解鉄めっき処理を行うと、試料中の Rh の約 60% が 30 分以内に溶解した。鉄などの卑な金属との合金

化によって、PGMsの溶解性が向上することが知られる<sup>⑤</sup>。アルミナ粉末状に担持されたPGMsが微粒子であるため、無電解めっき中にその一部が電析されたFeと合金化したと推定される。さらに、無電解めっき後に927 °Cで1時間の熱処理を行った場合には、Rhのほぼ全量が30分で溶解した。これは熱処理によって、電析された鉄との合金化が進行したためと理解される。

無電解鉄めっきを利用する化学的な前処理は、触媒スクラップ中のPGMsを磁力で濃縮分離可能な状態にするだけでなく、PGMsの酸溶解性の改善にも有効であることが確かめられた。図4に示したプロセスは、使用済み触媒からのPGMsのリサイクルの高度化に向け、実現可能かつ有用な新技術であると言える。

### 3. 塩化鉄蒸気との反応を利用する新規リサイクル技術の開発

#### 3.1 開発技術のコンセプト

自動車触媒はハニカム状のセラミクス構造体であり、その複雑かつ多孔質な表層組織にPGMsは存在している。このようなPGMsに対して効率的に化学的処理を行うには、反応物を気体として供給する手法も有用である。そこで本研究では、蒸気による化学処理(図8)と磁力による物理選別を組み合わせたりサイクル技術についても検討を行った<sup>[3]~[4]</sup>。

Feのハロゲン化物は蒸気圧が高いものが多い。また、PGMsとFeの合金は、Fe濃度が十分に高ければ、常温で強磁性を示す。図8に示すプロセスでは、触媒スクラップ表面に供給した塩化鉄蒸気との反応によって、PGMsをFeと合金化し、強磁性体へと変換する。強磁性を示すFe-PGMs合金は、磁力選別によって効率的に分離回収できるとともに、PGMsと比べて酸溶解性が大幅に高いと期待される。なお、触媒スクラップの粉碎は、塩化鉄蒸気による合金化処理の前あるいは後のどちらで行っても良い。

#### 3.2 効率的な鉄合金化が可能な反応場の設計

塩化鉄蒸気との反応を用いたPGMsの鉄合金化については、過去の特許でも提案されている<sup>⑥</sup>。その実施例では、FeCl<sub>3</sub>蒸気の存在下では、900 °CでPGMsがFeと合金化すると報告されているが、その反応機

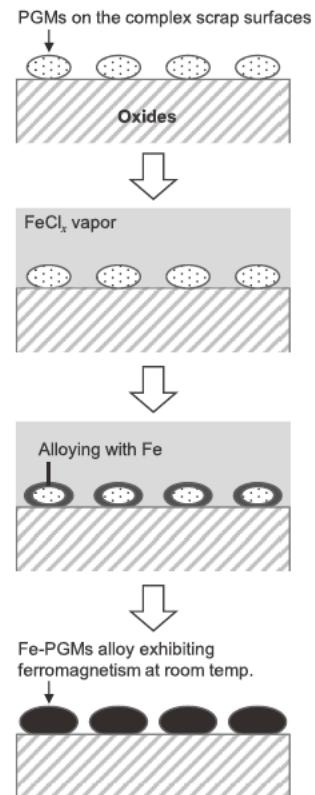


図8 塩化鉄蒸気との反応を利用する触媒スクラップ中のPGMsの鉄合金化の模式図<sup>[3]</sup>。

構は明らかにされておらず、また結果の信頼性・再現性についても大きな疑問があった。そこでまず、PtとFeCl<sub>x</sub>(x = 2, 3)との間の高温反応について熱力学的な解析を行うとともに、その妥当性を実験によって確かめた<sup>[3]</sup>。本研究によって、例えば、900 °C程度でのFeCl<sub>3</sub>蒸気との直接反応(FeCl<sub>3</sub>の熱分解反応)では、強磁性を示すFe-Pt合金は得られないことが明らかとなつた。また、FeCl<sub>2</sub>蒸気の不均化反応を利用すればPtを効率的にFeと合金化できることを明らかとした。図9に示すように、金属鉄の存在する反応系内においてPtをFeCl<sub>2</sub>蒸気と接触・反応させると、Ptの鉄合金化が急速に進行し、強磁性を示すFe-Pt合金を得ることが可能である。

PdとRhについても、FeCl<sub>2</sub>蒸気との反応によって鉄合金化・強磁性体への変換が可能であることが実験的に確かめられた<sup>[4]</sup>。さらに、触媒スクラップの主成分であるコージエライトやアルミナについては、同じ反応条件において、FeCl<sub>2</sub>蒸気と反応しないことが熱力学的解析と基礎的実験によって示された<sup>[4]</sup>。

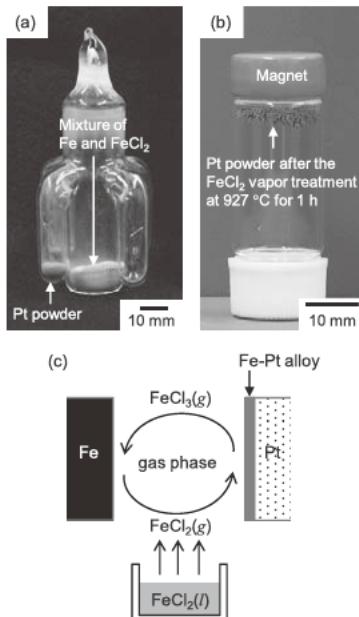


図9 (a)  $\text{FeCl}_2$ 蒸気との反応実験に用いた反応容器<sup>[3]</sup>. FeとPtは物理的に接触していない。(b)反応実験後のPt粉末<sup>[3]</sup>. 927 °Cで1時間保持することで $\gamma_2\text{-FePt}$ が得られた。(c)鉄合金化の機構<sup>[3]</sup>.  $\text{FeCl}_2$ 蒸気の不均化反応を利用し、Feとの合金化が進行.

図10は、実プロセスへの応用を想定した触媒スクラップの鉄合金化処理の模式図である。 $\text{FeCl}_2$ 蒸気で満たされた鉄鋼製容器内で触媒スクラップを加熱保持する。PGMsの表面では $\text{FeCl}_2$ の不均化反応が進行し、Feとの合金が形成される。不均化反応の副生成物である $\text{FeCl}_3$ は、鉄鋼製容器の内壁などで金属Feと反応し、 $\text{FeCl}_2$ へと再生される。触媒スクラップは複雑かつ多孔質な表面構造を有しているため、その表面には鉄合金化処理後において $\text{FeCl}_2$ が多量に付着する可能性がある。しかし、 $\text{FeCl}_2$ は蒸気圧が高いため、真空蒸留などの揮発操作によって触媒スクラップ中から容易に分離回収できる。提案する鉄合金化処理では、原理的には、 $\text{FeCl}_2$ は消費されず、処理コストのかかる金属塩化物廃液も発生しない。

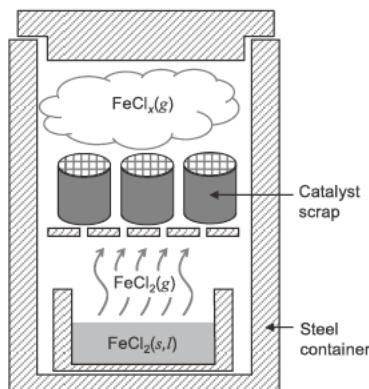


図10 実プロセスで想定される鉄合金化処理の模式図.

### 3.3 塩化鉄蒸気処理による白金の易溶化の実証

$\text{FeCl}_2$ 蒸気を用いた鉄合金化によって白金族金属の酸溶解性が向上することを、基礎的な実験によって確かめた。無処理のPt粉末(図11(a))、および鉄合金化処理後のPt粉末(図11(b))、平均組成は $\text{Fe}_{0.57}\text{Pt}_{0.43}$ 、XRDにより同定された相は $\gamma_2\text{-FePt}$ を、40 °Cの希釈王水(王水を同量の脱イオン水で希釈した溶液)中で40分間保持した。その結果、無処理のPt粉末は全く溶解しなかったのに対し、蒸気処理により得られたFePt粉末は完全に溶解した。

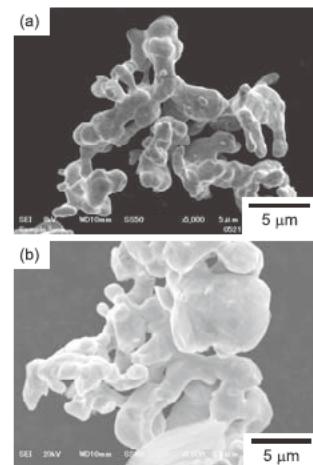


図11 (a)Pt粉末、(b)塩化鉄蒸気との反応によって鉄と合金化したPt粉末。鉄合金化処理により得られたFePt合金は、希釈王水により容易に溶解した。

$\text{FeCl}_2$ 蒸気による合金化処理(図8)を利用すれば、原理的には、使用済み触媒からPGMsを効率的に回収できることが明らかとなった。この新たなりサイクル技術の実用化に向けては、模擬触媒や実際のスクラップを用いたプロセスの有用性の実証などが今後必要である。

### 3.4 塩化鉄蒸気を利用した前処理の他の貴金属スクラップへの展開

金(Au) やイリジウム(Ir)についても、金属鉄の存在する反応系内において  $\text{FeCl}_2$  蒸気と接触・反応させることにより、効率的に Fe と合金化できることが確かめられた(図 12 および図 13)。

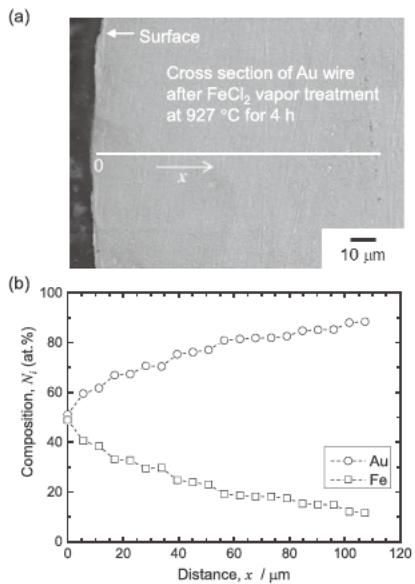


図 12  $\text{FeCl}_2$  蒸気による鉄合金化処理後の Au 線。断面の(a)SEM 像と(b)組成プロファイル。鉄合金化処理後の Au 線は磁性を示した。

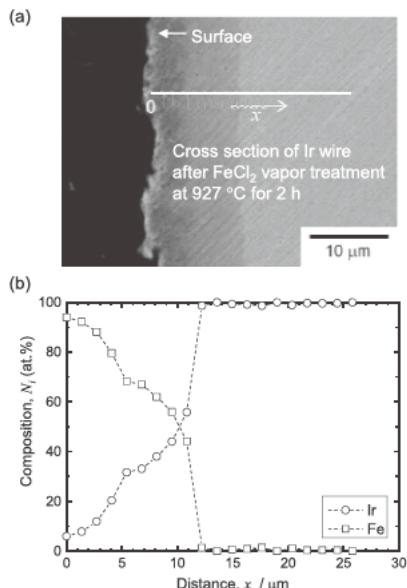


図 13  $\text{FeCl}_2$  蒸気による鉄合金化処理後の Ir 線。断面の(a)SEM 像と(b)組成プロファイル。鉄合金化処理後の Ir 線は磁性を示した。

適切な反応条件などについて、今後、より詳細な検討が必要ではあるが、 $\text{FeCl}_2$  蒸気との反応を利用するリサイクル技術は、E-scrap(電気電子機器廃棄物)など他の貴金属スクラップに対しても展開できると考えられる。

### 4. 新規リサイクル技術によって実現される新たなリサイクルモデル

本研究で開発した新技術は、大規模な設備を必要とせず低コストで実施が可能である。そのため開発が進めば、現行の乾式・湿式リサイクルプロセスの前処理として用いることにより、リサイクル全体の効率や環境調和性を向上できる(図 3)。また本技術は、「使用済み触媒を収集する各都市部の拠点」や「自動車の解体現場」において PGMs を粗回収する技術(オンサイト型リサイクル技術)としても利用できると期待される。

PGMs は高価であるとともに価格変動が大きい。そのため、PGMs リサイクルのリードタイムの短縮は、産業的に重要な課題である。使用済み自動車からの触媒の回収は、都市部を含む世界各地で行われている。一方、触媒スクラップ中からの PGMs の分離抽出には、特殊な設備を有する製錬所やリサイクル工場での処理が必要であるがその立地は限られる。そのため、自動車から回収した触媒は、多くの場合、海上輸送や陸上輸送によって処理プラントへと運ばれている(図 14)。本研究で有用性を示した新技術を利用すれば、スクラップを回収した業者が、大規模な製錬所やリサイクル工場に持ち込む前に、その場で PGMs を濃縮分離できる。PGMs の濃縮物は、処理前の触媒スクラップと比べて単位重量当たりの経済的な価値が桁違いに高いため、航空輸送を介して大規模な製錬所やリサイクル工場に送ることが経済的に可能となる(図 14)。このように、新技術を触媒の回収・収集現場でのオンサイト型リサイクル技術として利用すれば、リサイクル全体のリードタイムが大幅に短縮された新しい流通経路の出現に繋がると期待される。

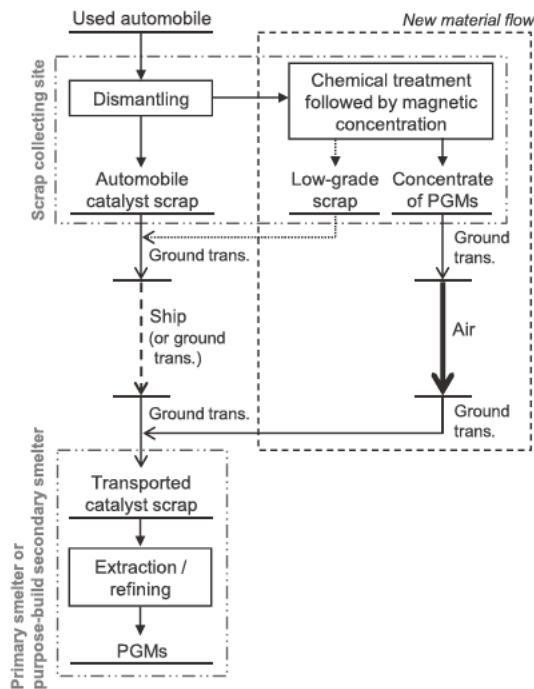


図 14 触媒スクラップの流通経路<sup>[1]</sup>。化学的前処理と磁力選別を組み合わせた新技術を触媒の回収・収集現場でのオンライン型リサイクル技術として用いることにより、リサイクルのリードタイムが短い新たな流通経路が出現すると期待される。

## 5. おわりに

使用済み自動車触媒から回収される白金族金属の量は、今後大きく増加すると予想されており、リサイクルの効率や環境調和性の向上が求められている。また、日本のような自動車産業を核とする先進国にとって白金族金属のリサイクルは、レアメタル資源の長期的かつ多角的な安定確保の面だけでなく、地球の環境保全への貢献の点でも重要な取り組みである。本研究では、使用済み自動車触媒に含まれる白金族金属を、磁力で濃縮分離とともに酸溶解の高い状態に変換する新技術を開発した。未だ基礎研究の段階ではあるものの、無電解めっきや金属塩化物蒸気との反応を利用した前処理を行うことによって、白金族金属の磁力による濃縮分離と酸に対する易溶化が可能であることが実証された。今後、本技術のさらなる開発が進めば、分離回収効率や環境調和性に優れた次世代型リサイクル技術を実現できると期待される。

## 謝辞

本研究に対してご援助いただいた公益財団法人マツダ財団ならびに関係各位に対し、ここに記して感謝申し上げる。

## 発表論文

- [1] Y. Taninouchi, T. Watanabe, and T.H. Okabe: "Magnetic Concentration of Platinum Group Metals from Catalyst Scraps Using Iron Deposition Pretreatment," *Metallurgical and Materials Transactions B*, Vol. 48, Issue 4, (2017) pp. 2027-2036.
- [2] Y. Taninouchi, T. Watanabe, and T.H. Okabe: "Enhanced Dissolution of Platinum Group Metals Using Iron Deposition Pretreatment," *Metallurgical and Materials Transactions B*, Vol. 48, Issue 6, (2017) pp. 2866-2872.
- [3] Y. Taninouchi and T.H. Okabe: "Effective Alloying Treatment for Platinum Using Iron Chloride Vapor," *Materials Transactions*, Vol. 59, Issue 1, (2018) pp. 88-97.
- [4] Y. Taninouchi and T.H. Okabe: "Recovery of Platinum Group Metals from Spent Catalysts Using Iron Chloride Vapor Treatment," *Metallurgical and Materials Transactions B*, (in press).

## 参考文献

- (1) *Platinum Group Metals Survey 2017* (Thomson Reuters, 2017).
- (2) Johnson Matthey Platinum Today.  
<http://www.platinum.matthey.com/>
- (3) F.K. Crundwell, M.S. Moats, V. Ramachandran, T.G. Robinson, and W.G. Davenport: *Extractive metallurgy of nickel, cobalt and platinum-group metals*, Elsevier, Oxford, 2011.
- (4) K. Nose and T.H. Okabe: *Treatise on Process Metallurgy, Volume 3: Industrial Processes*, Elsevier, London, 2013, pp. 1071–1097.
- (5) F. Habashi (ed.): *Handbook of Extractive Metallurgy*, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, 1997, Vol. III, pp. 1269–1326
- (6) T.H. Okabe and J. Mitsui: Japan Patent, P5946034, 2016 (in Japanese).
- (7) Y. Akimoto, Y. Hoshino, M. Sato, and T. Utsunomiya: *Journal of the Metal Finishing Society of Japan*, Vol. 25, Issue 12, (1973) pp. 666–670 (in Japanese).
- (8) M.A. Dinderman, W.J. Dressick, C.N. Kostelansky, R.R. Price, S.B. Qadri, and P.E. Schoen: *Chemistry of Materials*, Vol. 18, (2006) pp. 4361–4368.
- (9) G.-F. Huang, W.-Q. Huang, L.-L Wang, Y. Meng, Z. Xie, and B.S. Zou: *Electrochimica Acta*, Vol. 51, (2006) pp. 4471–4476.
- (10) J.-W. Yi, S.-B. Lee, J.-B. Kim, and S.-K. Lee: *Surface and Coating Technology*, Vol. 204, (2010) pp. 1419–1425.